

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> :</b> C08L 101/00, 67/02, C08K 3/08, C09C 1/64, C08J 11/06, B29B 17/00, B09B 3/00 // (C08L 101/00, 69:00) (C08L 67/02, 69:00, 51:04)	<b>A1</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:</b> WO 98/49238  <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 5. November 1998 (05.11.98)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP98/02380 <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 22. April 1998 (22.04.98)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 197 17 878.2      28. April 1997 (28.04.97)      DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BASF AKTIENGESellschaft [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE). GENERAL ELECTRIC COMPANY [US/US]; Schenectady, NY 12301 (US).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ZELTNER, Doris [DE/DE]; Viehtriftstrasse 94, D-67354 Römerberg (DE). FRITSCH, Thomas [DE/DE]; Horst-Schork-Strasse 114, D-67069 Ludwigshafen (DE). BERGMANN, Leander [DE/DE]; In den Mühlgärten 50, D-63755 Alzenau (DE).  <b>(74) Anwalt:</b> ISENBRUCK, Günter; Bardehle, Theodor-Heuss-Anlage 12, D-68165 Mannheim (DE).	<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> BR, CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	
<b>(54) Title:</b> USE OF RECYCLED CD MATERIAL AS AN ADDITIVE FOR GLITTER DYES  <b>(54) Bezeichnung:</b> VERWENDUNG VON CD-REZYKLAT ALS EINSATZSTOFF FÜR FLITTEREINFÄRBUNGEN  <b>(57) Abstract</b> <p>The invention relates to molding materials, containing at least one thermoplastic or duro-plastic polymer as constituent A, fine-particle recycled material containing fine particle aluminium, enamel, polycarbonate and optionally printing ink as constituent B and conventional additives as constituent C. The molding materials can be used to produce large, outer automobile surface parts.</p> <b>(57) Zusammenfassung</b> <p>Die Erfindung betrifft Formmassen enthaltend mindestens ein thermoplastisches oder duroplastisches Polymer als Komponente A, ein kleinteiliges Rezyklat enthaltend feinteiliges Aluminium, Lack, Polycarbonat und gegebenenfalls Druckfarbe als Komponente B und übliche Zusatzstoffe als Komponente C. Die Formmassen können zur Herstellung großflächiger Außenteile für Kraftfahrzeuge verwendet werden.</p>		

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

---

5      **Verwendung von CD-Rezyklat als Einsatzstoff für Flittereinfärbungen**

---

10      Die Erfindung betrifft Formmassen, enthaltend ein aluminiumhaltiges Rezyklat, Verfahren zu ihrer Herstellung sowie die Verwendung der Formmassen.

Compactdiscs sind Träger hochwertiger Rohstoffe. Sie bestehen aus einem  
15      Polycarbonat-Träger und einer auf diesem aufgetragenen Aluminiumschicht, die zusätzlich klarlackiert und mit einem Label bedruckt ist. Recycling von Compactdiscs (CD's) wird daher heute in großem Umfang betrieben. Rezykliert werden vor allem Fehlchargen aus der CD-Produktion sowie nicht abgesetzte Ware.

20      Bisherige Recyclingverfahren zielen auf die Wiedergewinnung des hochwertigen Polycarbonat-Trägermaterials ab. Dazu wird die Deckschicht aus Aluminium, Klarlack und Aufdruck nach unterschiedlichen Verfahren von dem Polycarbonat-Trägermaterial abgetrennt. So können das Altmaterial  
25      kleingemahlen und eingeschmolzen werden und feste Verunreinigungen durch Filtration aus der Schmelze abgetrennt werden. Granuliertes Altmaterial kann darüber hinaus einem chemischen Reinigungsprozeß, wie in DE-A 43 42 830 beschrieben, durch Auflösen der Beschichtung in konzentrierter Schwefelsäure unterzogen werden.

30      Bei den meisten bekannten Verfahren wird die Beschichtung jedoch mechanisch abgetrennt.

Aus der DE-A 44 03 173 ist ein Verfahren zum Entschichten von CD's  
35      durch mechanisches Abstrahlen der CD mit einem Granulat aus einem

duroplastischen Kunststoff offenbart. Die entschichteten CD's werden zur Herstellung neuer CD's verwendet.

In K. A. Boudrou and R. A. Malloy, Polym. Mater. Sci. Eng. 67 (1992),  
5 S. 401 - 403 ist eine Vorrichtung zur Wiedergewinnung des Polycarbonat-Trägermaterials aus CD's beschrieben, bei der die mechanische Entfernung der Aluminiumschichtungen mittels einer rotierenden Bürste erfolgt.

In DE-A 43 40 595 ist zur Wiedergewinnung der Trägerschicht eine Vor-  
10 richtung zur Entschichtung beschrieben, bei der die Metallbeschichtung mit einem Fräskopf abgetragen wird.

Bei dem in DE-C 41 23 199 offenbarten Verfahren erfolgt die Entschichtung der CD's zur Wiedergewinnung von Polycarbonat durch einen spanabhebenden Schnitt mit einem Messer.  
15

In der in US-A 5 203 067 beschriebenen Vorrichtung wird zum Entschichten der CD's ein rotierender, zylindrischer Hobel mit schraubenförmig auf diesem angeordnetem Messer verwendet.  
20

Alle aus dem Stand der Technik bekannten Verfahren zielen auf die Wiedergewinnung des Polycarbonat-Trägermaterials ab, das mit frischem PC-Granulat gemischt vorzugsweise für die Herstellung neuer CD's eingesetzt wird.  
25

Die abgetrennten Deckschichten aus Aluminium, Klarlack und Aufdruck müssen, sofern sich keine anderweitige Verwendung findet, deponiert werden, wodurch Entsorgungskosten verursacht werden. Zudem werden wertvolle Rohstoffe vergeudet, die andernorts zusätzlich abgebaut und aufbereitet  
30 werden müssen, wodurch die Umwelt zusätzlich belastet wird.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, das in den Deckschichten flächiger Informationsträger wie CD's enthaltene Aluminium einer sinnvollen Verwertung zuzuführen und damit das Recycling von Compactdiscs auf alle ihre wesentlichen Bestandteile auszudehnen.

5

Gelöst wird die Aufgabe durch Formmassen enthaltend

a) 50 bis 99,9 Gew.-% mindestens eines thermoplastischen oder duroplastischen Polymeren als Komponente A,

10

b) 0,1 bis 30, bevorzugt 0,5 bis 20 Gew.-% eines kleinteiligen Rezyklats als Komponente B aus

15

b1) 0,01 bis 50 Gew.-% feinteiligem Aluminium, bevorzugt Aluminiumflitter, als Komponente B1,

b2) 0,01 bis 50 Gew.-% Lack, bevorzugt Acryllack als Komponente B2 und

b3) 0 bis 1 Gew.-% Druckfarbe als Komponente B3 und

20

b4) 10 bis 99,9 Gew.-% Polycarbonat als Komponente B4,

wobei die Summe der Gewichtsprocente der Komponenten B1 bis B3 100 Gew.-% beträgt,

25

und

c) 0 bis 50 Gew.-% übliche Zusatzstoffe als Komponente C,

wobei die Summe der Gewichtsprozente der Komponenten A und B und gegebenenfalls C 100 Gew.-% beträgt.

Somit besteht die Lösung der Aufgabe im Einsatz von Rezyklatanteilen für  
5 Flittereinfärbungen von Polymeren zur Erzeugung von Formmassen.

### KOMPONENTE A

10 Die erfindungsgemäßen Formmassen können als Komponente A beliebige thermoplastische oder duroplastische Polymere enthalten.

Bevorzugte thermoplastische Polymere sind Polycarbonat (PC), thermoplastische Polyester wie Polybutylenterephthalat (PBT) oder Polyethylenterephthalat  
15 (PET), vinylaromatische Polymere wie ABS-, ASA-, SAN-Copolymere und Polystyrol, Polyamide sowie entsprechende Blends der genannten Polymere, ferner Hochtemperaturthermoplaste wie PSU, PES, PEK, PEI und PPS sowie Polyolefine.

20 Als für die erfindungsgemäßen Formmassen insbesondere geeignet sind nachstehend einige thermoplastische Polymerisate etwas näher erläutert.

### POLYESTER

25

Für die erfindungsgemäßen Formmassen geeignete Polyester sind an sich bekannt und in der Literatur beschrieben. Sie enthalten einen aromatischen Ring in der Hauptkette, der von einer aromatischen Dicarbonsäure herrührt. Der aromatische Ring kann auch substituiert sein, z.B. durch Halogen wie

Chlor und Brom oder durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylgruppen wie Methyl-, Ethyl-, i- bzw. n-Propyl- und n-, i- bzw. tert.-Butylgruppen.

Die Polyester können durch Umsetzung von aromatischen Dicarbonsäuren, deren Estern oder anderer esterbildender Derivate derselben mit aliphatischen Dihydroxyverbindungen in an sich bekannter Weise hergestellt werden.

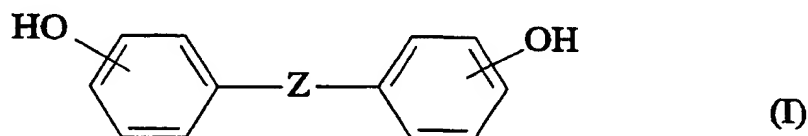
Als bevorzugte Dicarbonsäuren sind Naphthalindicarbonsäure, Terephthalsäure und Isophthalsäure oder deren Mischungen zu nennen. Bis zu 10 mol.-% der aromatischen Dicarbonsäuren können durch aliphatische oder cycloaliphatische Dicarbonsäuren wie Adipinsäure, Azelainsäure, Sebacinsäure, Dodecandisäuren und Cyclohexandicarbonsäuren ersetzt werden.

Von den aliphatischen Dihydroxyverbindungen werden Diole mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere 1,2-Ethandiol, 1,4-Butandiol, 1,6-Hexandiol, 1,4-Hexandiol, 1,4-Cyclohexandiol und Neopentylglykol oder deren Mischungen bevorzugt.

Als besonders bevorzugte Polyester sind Polyalkylenterephthalate, die sich von Alkandiolen mit 2 bis 6 C-Atomen ableiten, zu nennen. Von diesen werden insbesondere Polyethylenterephthalat, Polyethylenphthalat und Polybutylenterephthalat, speziell Polybutylenterephthalat, bevorzugt.

## **POLYCARBONATE**

Geeignete Polycarbonate, die in den erfindungsgemäßen Formmassen als Komponente A bzw. A2 enthalten sein können, sind beispielsweise solche auf der Basis von Diphenolen der allgemeinen Formel I



5

worin Z eine Einfachbindung, eine  $C_1-C_6$ -Alkyl-, eine  $C_2-C_6$ -Alkyliden-, eine  $C_3-C_{12}$ -Cycloalkylidengruppe sowie -S- oder  $-SO_2$ - bedeutet.

Beispiele für  $C_1-C_6$ -Alkylengruppen sind Methylen, Ethylen, Propylen, 1,1-Dimethylethylen, 1,3-Dimethylpropylen, 2-Methylbutylen und 2,3-Dimethylbutylen. Beispiele für  $C_2-C_6$ -Alkylidengruppen sind Ethyliden und 1,1- und 2,2-Propyliden. Beispiele für  $C_3-C_{12}$ -Cycloalkylidengruppe sind Cyclopentyliden, Cyclohexyliden und 3,3,5-Trimethylcyclohexyliden.

Bevorzugte Diphenole der allgemeinen Formel I sind beispielsweise Hydrochinon, Resorcin, 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan. Besonders bevorzugt sind 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan sowie 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan.

25

Sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate sind geeignet, bevorzugt sind neben den Bisphenol A-Homopolycarbonaten die Copolycarbonate von Bisphenol A.

Die geeigneten Homopolycarbonate können in bekannter Weise verzweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 mol-%, bezogen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an mindestens trifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei oder mehr phenolischen Gruppen.

30



Als besonders geeignet haben sich Polycarbonate erwiesen, die relative Viskositäten  $\eta_{rel}$  von 1,1 bis 1,5, insbesondere von 1,25 bis 1,4 aufweisen. Dies entspricht mittleren Molekulargewichten  $M_w$  (Gewichtsmittelwert) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise von 20 000 bis 80 000.

5

Die Diphenole der allgemeinen Formel I sind an sich bekannt oder nach bekannten Verfahren herstellbar.

Die Herstellung der Polycarbonate kann beispielsweise durch Umsetzung der  
10 Diphenole mit Phosgen nach dem Phasengrenzflächenverfahren oder mit Phosgen nach dem Verfahren in homogener Phase (dem sogenannten Pyridinverfahren) erfolgen, wobei das jeweils einzustellende Molekulargewicht in bekannter Weise durch eine entsprechende Menge an bekannten Kettenabbrechern erzielt wird. Polycarbonate können auch durch Umesterung und  
15 Polymerisation in der Schmelze hergestellt werden.

Geeignete Kettenabbrecher sind beispielsweise Phenol, p-tert.-Butylphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethyl-butyl)-phenol gemäß DE-A 28 42 005, oder Monoalkylphenole oder Dialkylphenole mit  
20 insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten gemäß DE-A 35 06 472, wie beispielsweise p-Nonylphenol, 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol, 2-(3,5-Dimethyl-heptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol.

**VINYLAROMATISCHE POLYMERE, COPOLYMERE UND DEREN BLENDS**

Das Molekulargewicht dieser an sich bekannten und im Handel erhältlichen Polymeren liegt im allgemeinen im Bereich von 1.500 bis 2.000.000, vorzugsweise im Bereich von 70.000 bis 1.000.000.

Nur stellvertretend seien hier vinylaromatische Polymere aus Styrol, Chlorstyrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und p-Methylstyrol genannt; in untergeordneten Anteilen (vorzugsweise nicht mehr als 20, insbesondere nicht mehr als 8 Gew.-%), können auch Comonomere wie (Meth)acrylnitril oder (Meth)acrylsäureester am Aufbau beteiligt sein. Besonders bevorzugte vinylaromatische Polymere sind Polystyrol und schlagzäh modifiziertes Polystyrol. Es versteht sich, daß auch Mischungen dieser Polymeren eingesetzt werden können.

Bevorzugte ASA-Polymerisate sind aufgebaut aus einer Weich- oder Kautschukphase aus einem Pfropfcopolymerisat aus:

A<sub>1</sub> 50 bis 90 Gew.-% einer Pfropfgrundlage auf Basis von

A<sub>11</sub> 95 bis 99,9 Gew.-% eines C<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>-Alkylacrylats und

A<sub>12</sub> 0,1 bis 5 Gew.-% eines difunktionellen Monomeren mit zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen, und

A<sub>2</sub> 10 bis 50 Gew.-% einer Pfropfaufgabe aus

A<sub>21</sub> 20 bis 50 Gew.-% Styrol oder substituierten Styrolen oder deren Mischungen, und

A<sub>22</sub> 10 bis 80 Gew.-% Acrylnitril, Methacrylnitril, Acrylsäureestern oder Methacrylsäureestern oder deren Mischungen,

in Mischung mit einer Hartmatrix auf Basis eines SAN-Copolymeren  $A_3$  aus:

- 5             $A_{31}$         50 bis 90, vorzugsweise 55 bis 90 und insbesondere 65 bis 85  
Gew.-% Styrol und/oder substituierten Styrolen und
- $A_{32}$         10 bis 50, vorzugsweise 10 bis 45 und insbesondere 15 bis 35  
Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril.

Bei der Komponente  $A_1$  handelt es sich um ein Elastomeres, welches eine  
10 Glasübergangstemperatur von unter  $-20^\circ\text{C}$ , insbesondere unter  $-30^\circ\text{C}$  aufweist.

Für die Herstellung des Elastomeren werden als Hauptmonomere  $A_{11}$  Ester  
der Acrylsäure mit 2 bis 10 C-Atomen, insbesondere 4 bis 8 C-Atomen  
eingesetzt. Als besonders bevorzugte Monomere seien hier tert., iso- und  
15 n-Butylacrylat sowie 2-Ethylhexylacrylat genannt, von denen die beiden  
letztgenannten besonders bevorzugt werden.

Neben diesen Estern der Acrylsäure werden 0,1 bis 5, insbesondere 1 bis  
4 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht  $A_{11} + A_{12}$  eines polyfunktionel-  
20 len Monomeren mit mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppel-  
bindungen eingesetzt. Von diesen werden difunktionelle Verbindungen, d.h.  
mit zwei nicht konjugierten Doppelbindungen bevorzugt verwendet. Beispiels-  
weise seien hier Divinylbenzol, Diallylfumarat, Diallylphthalat, Triallylcyanu-  
rat, Triallylisocyanurat, Tricyclodeceny lacrylat und Dihydrodicyclopentadienyl-  
25 acrylat genannt, von denen die beiden letzten besonders bevorzugt werden.

Geeignete SAN-Polymere sind vorstehend (siehe  $A_{31}$  und  $A_{32}$ ) beschrieben.

Geeignete ABS-Polymere weisen einen vergleichbaren Aufbau wie vorstehend  
30 für ASA-Polymere beschrieben auf. Anstelle des Acrylatkautschukes  $A_1$  der

Pfropfgrundlage beim ASA-Polymer werden üblicherweise konjugierte Diene, eingesetzt, so daß sich für die Pfropfgrundlage A<sub>4</sub> vorzugsweise folgende Zusammensetzung ergibt:

- 5        A<sub>41</sub>        70 bis 100 Gew.-% eines konjugierten Diens und  
         A<sub>42</sub>        0 bis 30 Gew.-% eines oder mehrerer difunktionelle Monomeren mit zwei olefinischen nicht-konjugierten Doppelbindungen

- 10    Pfropfaufgabe A<sub>2</sub> und die Hartmatrix des SAN-Copolymeren A<sub>3</sub> bleiben in der Zusammensetzung unverändert. Derartige Produkte sind im Handel erhältlich. Die Herstellverfahren sind dem Fachmann bekannt, so daß sich weitere Angaben hierzu erübrigen.

15

#### POLYAMIDE

- Für die erfindungsgemäßen Formmassen geeignete Polyamide weisen im allgemeinen eine Viskositätszahl von 90 bis 350, vorzugsweise 110 bis 240  
20    ml/g auf, bestimmt in einer 0,5 gew.-%-igen Lösung in 96 gew.-%-iger Schwefelsäure bei 25°C auf gemäß ISO 307.

- Bevorzugt sind Polyamide, die sich von Lactamen mit 7 bis 13 Ringgliedern ableiten, wie Polycaprolactam, Polycapryllactam und Polylaurinlactam sowie  
25    Polyamide, die durch Umsetzung von Dicarbonsäuren mit Diaminen erhalten werden.

Als Dicarbonsäuren sind Alkandicarbonsäuren mit 6 bis 12, insbesondere 6 bis 10 Kohlenstoffatomen und aromatische Dicarbonsäuren einsetzbar. Hier

seien nur Adipinsäure, Azelainsäure, Sebacinsäure, Dodecandisäure und Terephthal- und/oder Isophthalsäure als Säuren genannt.

Als Diamine eignen sich besonders Alkandiamine mit 6 bis 12, insbesondere  
5 6 bis 8 Kohlenstoffatomen sowie m-Xylylendiamin, Di-(4-aminophenyl)methan, Di-(4-aminocyclohexyl)-methan, 2,2-Di-(4-aminophenyl)-propan oder 2,2-Di-(4-aminocyclohexyl)-propan.

Bevorzugte Polyamide sind Polyhexamethylenadipinsäureamid, Polyhexamethylensebacinsäureamid und Polycaprolactam sowie Copolyamide 6/66, insbesondere  
10 mit einem Anteil von 5 bis 95 Gew.-% an Caprolactam-Einheiten.

Außerdem seien auch noch Polyamide erwähnt, die z.B. durch Kondensation von 1,4-Diaminobutan mit Adipinsäure unter erhöhter Temperatur erhältlich  
15 sind (Polyamid-4,6).

Weiterhin sind Polyamide, die durch Copolymerisation zweier oder mehrerer der vorgenannten Monomeren erhältlich sind, oder Mischungen mehrerer Polyamide geeignet, wobei das Mischungsverhältnis beliebig ist.

20

#### POLYOLEFINE

Hier sind ganz allgemein Polyethylen und Polypropylen sowie Copolymerisate  
25 auf der Basis von Ethylen oder Propylen, gegebenenfalls auch mit höheren  $\alpha$ -Olefinen zu nennen.

Besonders bevorzugte Formmassen enthalten eine Komponente A aus

- a1) 10 bis 85, bevorzugt 20 bis 85 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polyesters als Komponente A1,
- 5 a2) 10 bis 85, bevorzugt 15 bis 60 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polycarbonats als Komponente A2
- a3) 2 bis 35, bevorzugt 5 bis 30 Gew.-% Schlagzähmodifizier als Komponente A3.
- 10 wobei die Summe der Gewichtsprocente der Komponenten A1 bis A3 100 Gew.-% beträgt.

Als Komponente A1 können die oben genannten Polyester eingesetzt werden. Bevorzugt sind Polyethylenterephthalat und Polybutylenterephthalat, insbesondere Polybutylenterephthalat.

15

Als Komponente A2 können die oben aufgeführten Polycarbonate eingesetzt werden.

20 Als Komponente A3 bevorzugte Schlagzähmodifizier sind Pfropfcopolymerisate aus

a31) 40 bis 80, bevorzugt 50 bis 70 Gew.-% einer Pfropfgrundlage aus einem kautschukelastischen Polymeren mit einer Glasübergangstemperatur von unter 0°C als Komponente A31,

25

a32) 20 bis 60, bevorzugt 30 bis 50 Gew.-% einer Pfropfaufgabe aus

a321) 50 bis 95, bevorzugt 60 bis 80 Gew.-% Styrol oder substituierten Styrolen oder Methylmethacrylat oder deren Mischungen als Komponente A321 und

a322) 5 bis 50, bevorzugt 20 bis 40 Gew.-% Acrylnitril, Methacrylniril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid oder deren Mischungen als Komponente A322.

Für die Pfropfgrundlage A31 kommen Polymerisate in Frage, deren Glasübergangstemperatur unterhalb von 10°C, bevorzugt unterhalb von 0°C, insbesondere unterhalb von -20°C liegt. Dies sind zum Beispiel Naturkautschuk, Synthesekautschuk auf der Basis von konjugierten Dienen, gegebenenfalls mit anderen Copolymeren, sowie Elastomere auf der Basis von C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylestern der Acrylsäure, die gegebenenfalls weitere Comonomere enthalten können.

15

#### KOMPONENTE B

Als Komponente B enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 0,1 bis 30, bevorzugt 0,5 bis 20 Gew.-% eines kleinteiligen Rezyklats aus

20

b1) 0,01 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 30 Gew.-% feinteiligem Aluminium, bevorzugt Aluminiumflitter, als Komponente B1,

25

b2) 0,1 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 1 bis 10 Gew.-% Lack, bevorzugt Acryllack als Komponente B2,

b3) 0 bis 1 Gew.-%, bevorzugt < 0,01 Gew.-% Druckfarbe als Komponente B3 und

b4) 10 bis 99,89 Gew.-%, bevorzugt 30 bis 99, besonders bevorzugt 50 bis 95 Gew.-% Polycarbonat als Komponente B4,

wobei die Summe der Gewichtsprocente der Komponenten B1 bis B4 100 Gew.-% beträgt,

Das kleinteilige Rezyklat kann durch mechanische Abtrennung aluminiumhaltiger Deckschichten von der polycarbonathaltigen polymeren Trägerschicht flächiger Informationsträger und Zerkleinerung der Deckschichten gewonnen werden. Vorzugsweise werden als flächige Informationsträger Compactdiscs eingesetzt.

Vorstehend und nachstehend soll der Begriff Rezyklat bedeuten, daß tatsächlich nur ein Anteil des Rezyklats von CD's eingesetzt wird, der die angegebenen Komponenten B1 bis B4 enthält. Diese sind die üblichen Bestandteile von CD's oberhalb der flächigen Trägerschicht und enthalten als Komponente B4 noch Bestandteile der Trägerschicht. Der Begriff "Rezyklat" wird der Einfachheit halber verwendet.

Geeignete Verfahren und Vorrichtungen zur mechanischen Abtrennung der Deckschichten sind dem Fachmann bekannt und in den oben zitierten Druckschriften beschrieben. Die mechanische Abtrennung der Schichten kann, beispielsweise wie in DE-C 41 23 199 beschrieben, durch einen spanabhebenden Schnitt erfolgen. In Frage kommen auch die Abtrennung der Deckschicht unter Verwendung einer Fräse, eines Hobels, eines Messers oder einer Schleifbürste.

Das mechanische Abtrennverfahren kann eine zumindest teilweise Zerkleinerung der Deckschichten einschließen. Im allgemeinen fallen die abgetrennten Deckschichten als mehr oder weniger kleinteilige Pulver oder Späne an. Die



Pulver oder Späne können nachfolgend weiter bis zur gewünschten Korngröße zerkleinert werden. Es können übliche Trocken- und Naßmahlverfahren zur Zerkleinerung von Metallen zur Anwendung kommen. Vorzugsweise erfolgt die Zerkleinerung im Kaltmahlverfahren. Das Kaltmahlverfahren  
5 beruht auf der Versprödung vieler Materialien bei tiefen Temperaturen, wodurch sie sich mit relativ geringem Energieaufwand zerkleinern und in ihre Bestandteile zerlegen lassen. Beispielsweise kann die abgetrennte Deckschicht, die gegebenenfalls zu einem Granulat vorzerkleinert worden ist, in einem Wirbelschneckenkühler oder Wirbelrohrkühler durch Verdampfen von  
10 flüssigem Stickstoff auf unter  $-40^{\circ}\text{C}$  abgekühlt und nachfolgend in einer Mühle zerkleinert werden. Es kann sich ein Schritt zum Aufkonzentrieren des Aluminiumanteils im Rezyklat, beispielsweise unter Ausnutzung des Dichtunterschiedes zwischen Aluminium- und Polymerkomponente, anschließen. Geeignete Vorrichtungen sind dem Fachmann bekannt.

15

Um ein Produkt mit gewünschter mittlerer Korngröße und Korngrößenverteilung zu erhalten, kann sich dem Mahlprozeß zusätzlich ein Schritt zum Auftrennen des Mahlgutes nach Kornklassen anschließen. Es können übliche Verfahren zum Trocken- oder Naßklassieren zum Einsatz kommen.

20

Vorzugsweise erfolgt die Auftrennung des Mahlgutes durch Sieben. Bevorzugt weisen die durch Sieben gewonnenen Fraktionen Teilchen einer Größe  $< 1000\text{ }\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt  $< 500\text{ }\mu\text{m}$ , insbesondere 1 bis  $500\text{ }\mu\text{m}$  auf.

25

Das kleinteilige Rezyklat kann Aluminiumpartikel unterschiedlicher Teilchengrößen, Teilchengrößenverteilung und Geometrie enthalten feinteiliges Aluminium. Die Aluminiumpartikel können sphärische oder nichtsphärische, plättchenförmige Partikel unterschiedlicher Dicke enthalten. Die nichtsphärischen,  
30 plättchenförmigen Partikel werden im folgenden als Flitter bezeichnet.

Vorzugsweise weist das als Komponente B zur Herstellung erfindungsgemäßen Formmassen eingesetzte Rezyklat Aluminiumflitter mit unregelmäßiger Geometrie auf.

## 5 KOMPONENTE C

Als Komponente C können die erfindungsgemäßen Formmassen übliche Zusatzstoffe und Verarbeitungshilfsmittel enthalten.

10 Als Zusatzstoffe können in Mengen von bis zu 50 Gew.-% z. B. faserförmige Füllstoffe wie Glasfasern, Kohlenstofffasern, Aramid-Fasern oder Kaliumtitanat-Fasern und als weitere Füllstoffe Magnesiumhydroxid, Aluminiumhydroxid, Kaolin, Wollastonit, Talkum und Kreide vorliegen.

15 Ferner seien - insbesondere wenn diese nicht bereits als Komponente A3 vorliegen - Schlagzähmodifizier genannt (auch als kautschukelastische Polymerisate oder Elastomere bezeichnet), die in Mengen von bis zu 20 Gew.-%, bevorzugt bis zu 15 Gew.-% enthalten sein können.

20 Als Schlagzähmodifizier - siehe auch weiter oben - geeignet sind übliche Kautschuke, z.B. Ethylencopolymere mit reaktiven Gruppen, Acrylatkautschuk und Polymerisate konjugierter Diene, wie Polybutadienkautschuk und Polyisoprenkautschuk. Die Dienpolymerisate können, in an sich bekannter Weise, teilweise oder vollständig hydriert sein. Außerdem kommen z.B. in Betracht:  
25 hydrierter Styrolbutadienkautschuk, Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk, Polybutylen- und Polyoctenamerkautechuke, Ionomere, Blockcopolymere aus vinylaromatischen Monomeren mit Dienen wie Butadien oder Isopren (z. B. bekannt aus EP-A 0 062 282) mit dem Aufbau  $M^1M^2$ -,  $M^1M^2M^1M^2$ - oder  $M^1M^2M^1$ -, wobei diese Blockpolymerisate auch Segmente mit statistischer  
30 Verteilung enthalten können, sowie Stern-Block-Copolymere. Als besonders

geeignet haben sich Polymerisate konjugierter Diene wie Polybutadienkautschuk oder Polyisoprenkautschuk erwiesen. Derartige synthetische Kautschuke sind dem Fachmann geläufig und zusammenfassend in "Ullmanns Encyklopädie der Technischen Chemie", 4.Auflage, Bd.13, Seiten 595 bis 634, Verlag Chemie GmbH, Weinheim 1977, beschrieben.

Als Zusatzstoffe seien außerdem Hitze- und Lichtstabilisatoren, Gleit- und Entformungsmittel, Flammenschutzmittel sowie weitere Färbemittel wie Farbstoffe und Pigmente in üblichen Mengen genannt.

10

Die Formmassen können nach an sich bekannten Verfahren durch inniges Vermischen der Komponenten A, B und gegebenenfalls C hergestellt werden, indem man die Ausgangskomponenten in üblichen Mischvorrichtungen wie Schneckenextrudern, Brabender-Mühlen oder Banbury-Mühlen mischt und anschließend extrudiert. Nach der Extrusion kann das Extrudat abgekühlt und zerkleinert werden. Es können auch einzelne Komponenten vorgemischt werden und dann die restlichen Ausgangsstoffe einzeln und/oder ebenfalls gemischt hinzugegeben werden. Die Mischtemperaturen liegen in der Regel zwischen 230 und 290°C. Die mit den erfindungsgemäßen Aluminiumpigmenten eingefärbten thermoplastischen Formmassen können nach üblichen Verfahren wie Spritzgießen, Extrudieren, Kalandrieren und Blasformen zu Formteilen verarbeitet werden.

15

20

Es wurde gefunden, daß sich das aluminiumflitterhaltige Rezyklat besonders leicht mit den Komponenten A und C vermischen und zu den thermoplastischen Formmassen verarbeiten läßt. Möglicherweise sind die guten Verarbeitungseigenschaften des Rezyklats auf die im Rezyklat enthaltenen Bestandteile Polycarbonat und Klarlack zurückzuführen.

25

Es ist auch erfindungsgemäß möglich, die Formmassen durch Vermischen der Einzelkomponenten A, B und gegebenenfalls C herzustellen, ohne daß ein Rezyklat als Komponente B verwendet wird. In diesem Fall ist Komponente B ein Gemisch aus

5

b1) 0,01 bis 50 Gew.-% feinteiligem Aluminium, bevorzugt Aluminiumflitter, als Komponente B1,

b2) 0,1 bis 50 Gew.-% Lack, bevorzugt Acryllack als Komponente B2,

10

b3) 0 bis 1 Gew.-% Druckfarbe als Komponente B3 und

b4) 10 bis 99,9 Gew.-% Polycarbonat als Komponente B4

15 wobei die Summe der Gewichtsprozente der Komponente B1 bis B4 100 Gew.-% beträgt, das durch Mischen der einzelnen, zunächst getrennt vorliegenden, gegebenenfalls kommerziell erhältlichen Komponenten B1 bis B4 hergestellt wird.

20 Die Verwendung der erfindungsgemäßen aluminiumflitterhaltigen Formmassen kann ästhetischen Zielen dienen. Durch die in den Formmassen enthaltenen Aluminiumflitter werden, wie in J. D. Kerr und B. Klein, Kunststoffe 85 (1995), S. 8 beschrieben, spezielle optische Effekte erzielt. Mögliche Anwendungsgebiete sind alle Einsatzgebiete, auf denen mit kommerziellen  
25 Aluminiumpigmenten eingefärbte Formmassen zur Erzielung optischer Effekte üblicherweise eingesetzt werden. Die Aluminiumflitter verleihen den erfindungsgemäßen Formmassen und den daraus hergestellten Kunststoffteilen ein metallisches Aussehen oder erzeugen Glitzer- oder Perleffekte. Die erzielten optischen Effekte werden in hohem Maße von Größe und Geometrie der  
30 Pigmente gesteuert. Die optischen Eigenschaften von Aluminiumpigmente in

Abhängigkeit von ihrer Form und Größenverteilung sowie die durch die durch verschiedene Aluminiumpigmente erzielbaren optischen Effekte sind dem Fachmann bekannt bzw. in dem vorstehend genannten Artikeln beschrieben. Um typische Metalliceffekte zu erzielen, enthalten die Formmassen  
5 Aluminiumpigmente mit einer plättchenförmigen Geometrie.

Die erfindungsgemäßen Formmassen eignen sich ferner für alle Anwendungen, die bestimmte, auf dem Aluminiumgehalt beruhende technische Wirkungen zum Ziel haben und für die auch nach bekannten Verfahren hergestellte,  
10 mit kommerziellen Aluminiumpigmenten eingefärbte Formmassen verwendet werden können. Beispiele sind in B. Klein und H.-H. Bunge "Kosten senken mit Effekt", Kunststoffe 86 (1996), Seite 1342 genannt. Zu durch die Aluminiumflitter bedingten technischen Wirkungen zählen die Absorption von Mikrowellenstrahlung und deren Umwandlung in Wärme durch Induktion von  
15 Wirbelströmen, wie sie beispielsweise zur Erzeugung eines Bratpfannen-Effektes in Kunststoff-Mikrowellengeschirr ausgenutzt wird, ferner die Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit durch den Aluminiumgehalt der Formmassen, beispielsweise in Gehäusen für elektronische Baugruppen. Die gute Wärmeleitung von Aluminium führt außerdem zu einer Verkürzung der  
20 Zykluszeiten bei der Spritzgießverarbeitung der aluminiumflitterhaltigen Formmassen. Weiterhin wirkt der Gehalt von die Wärmestrahlung reflektierenden Aluminiumpigmenten wärmeisolierend. Dieser Effekt kann beispielsweise in reflektierenden Dachunterspannfolien oder Landwirtschaftsfolien ausgenutzt werden. Da die Aluminiumpigmente auch UV-Licht reflektieren, bewirken sie  
25 einen Schutz des pigmentierten Kunststoffes. Aluminiumflitter mit großem Aspektverhältnis (Durchmesser/Dicke-Verhältnis) wirken durch Verlängerung des Diffusionsweges auch als Diffusionssperren und setzen somit die Permeationsfähigkeit von aluminiumflitterhaltigen Kunststoffmassen für Gase, Lösungsmittel etc. herab.

Übliche Anwendungsgebiete der erfindungsgemäßen Formmassen schließen die Herstellung von Sport- und Freizeitartikeln, Büro-, Küchen- und Haushaltsartikel, von Elektroartikeln sowie von Kraftfahrzeug-Karosserieteilen und Teilen der Kraftfahrzeug-Innenausstattung ein.

5

Bevorzugt werden die erfindungsgemäßen Formmassen im Fahrzeugbau zur Herstellung großflächiger Karosserieaußenteile wie Kotflügel, Türbeplankungen und Heckklappen zur Erzielung eines Metalliceffektes verwendet. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung werden dazu Form-

10 massen enthaltend Polycarbonat/Polybutylenterephthalat (PC/PBT)-Blends verwendet.

Die Erfindung wird durch das nachstehende Beispiel näher erläutert:

15

#### BEISPIEL

Es wurden folgende Komponenten eingesetzt:

- 20 A: 580 g Polybutylenterephthalat (z.B. Ultradur® B4520 der BASF AG, Ludwigshafen, DE), Viskositätszahl = 120 ml/g
- B: 150 g Polycarbonat (z.B. Lexan 161 der GE Plastics, BoZ, NL), VZ = 61 ml/g
- C: 100 g MBS-Kautschuk (z.B. Paraloid EXL 3600 von Rohm & Haas, Frankfurt, DE)
- 25 D: 10 g 4,4'-Biphenylen-diphosphonigsäure-tetra-(2,4-di-tert.-butylphenyl)ester (Irgafos® P-EPQ der Ciba Geigy, Basel, CH)
- E: 3 g 2-(2-Hydroxy-3,5-di-(1,1-dimethylpropyl)phenyl)benzotriazol (Tinuvin® 328 der Ciba Geigy, Basel, CH)

- F: 10 g Pentaerythrityl-tetra-(3-(3,5-di-tert.-butyl-4-hydroxy)phenyl)propionat  
(Irganox® 1010 der Ciba-Geigy, Basel, CH)
- G: 2,25 g Pentaerythritetetrastearat (z.B. Loxiol® P861/35 der Henkel AG,  
Düsseldorf, DE)
- 5 H: 1 g Talkum (z.B. Talkum IT Extra der Norwegian Talc AS, N)
- I: 150 g Rezyklat mit einer Teilchengröße < 500 µm enthaltend  
93,9 Gew.-% Polycarbonat  
6,0 Gew.-% Acryllack  
0,1 Gew.-% Aluminium  
10 < 0,01 Gew.-% Druckfarbe,  
hergestellt aus den Deckschichten von Compactdiscs.

Die Komponenten A) bis I) wurden gemischt und bei 260°C gemeinsam in  
ein Wasserbad extrudiert. Nach Granulierung und Trocknung wurden auf  
15 einer Spritzgußmaschine Prüfkörper gespritzt. Die Prüfkörper wiesen einen  
Metalliceffekt auf.

## Patentansprüche

5

### 1. Formmassen enthaltend

10

a) 50 bis 99,9 Gew.-% mindestens eines thermoplastischen oder duroplastischen Polymeren als Komponente A,

b) 0,1 bis 30 Gew.-% eines kleinteiligen Rezyklats als Komponente B aus

15

b1) 0,01 bis 50 Gew.-% feinteiligem Aluminium als Komponente B1,

b2) 0,1 bis 50 Gew.-% Lack als Komponente B2

b3) 0 bis 1 Gew.-% Druckfarbe als Komponente B3 und

20

b4) 10 bis 99,89 Gew.-% Polycarbonat als Komponente B4,

wobei die Summe der Gewichtsprozent der Komponenten B1 bis B4 100 Gew.-% beträgt,

25

und

c) 0 bis 50 Gew.-% übliche Zusatzstoffe als Komponente C,



wobei die Summe der Gewichtsprozent der Komponenten A und B und gegebenenfalls C 100 Gew.-% beträgt.

5 2. Formmassen nach Anspruch 1, enthaltend eine Komponente A aus

a1) 10 bis 85 Gew.-% eines aromatischen Poly-  
esters als Komponente A1,

10 a2) 10 bis 85 Gew.-% eines aromatischen Polycarbonats als Kompo-  
nente A2, und

a3) 2 bis 35 Gew.-% Schlagzähmodifizier als Komponente A3,

15 wobei die Summe der Gewichtsprozent der Komponenten A1 bis A3  
100 Gew.-% beträgt.

3. Formmassen nach Anspruch 1 oder 2, wobei feinteiliges Aluminium in  
Form von Aluminiumflittern eingesetzt wird.

20

4. Verfahren zur Herstellung von Formmassen nach Anspruch 1 oder 2  
durch inniges Vermischen der Komponenten A und gegebenenfalls C  
mit kleinteiligem Rezyklat, herstellbar durch mechanische Abtrennung  
aluminiumhaltiger Deckschichten von der polymeren Trägerschicht  
25 flächiger Informationsträger und Zerkleinerung der Deckschichten, als  
Komponente B.

5. Verfahren zur Herstellung von Rezyklat, wie es in Anspruch 1 definiert ist, durch mechanische Abtrennung aluminiumhaltiger Deckschichten von der polymeren Trägerschicht flächiger Informationsträger und Zerkleinerung der Deckschichten.
- 5
6. Formmassen, herstellbar nach dem Verfahren gemäß Anspruch 3.
7. Verwendung der Formmassen gemäß einem der Ansprüche 1, 2 oder 5 zur Herstellung von Formteilen.
- 10
8. Verwendung gemäß Anspruch 6 zur Herstellung großflächiger Außenteile für Kraftfahrzeuge.
9. Formmassen enthaltend
- 15
- a) 50 bis 99,9 Gew.-% mindestens eines thermoplastischen oder duroplastischen Polymeren als Komponente A,
- b) 0,1 bis 30 Gew.-% eines kleinteiligen Gemisches als Komponente B aus
- 20
- b1) 0,01 bis 50 Gew.-% feinteiligem Aluminium als Komponente B1,
- b2) 0,1 bis 50 Gew.-% Lack als Komponente B2,
- 25
- b3) 0 bis 1 Gew.-% Druckfarbe als Komponente B3 und
- b4) 10 bis 99,9 Gew.-% Polycarbonat als Komponente B4,
- 30

wobei die Summe der Gewichtsprocente der Komponente B1 bis B4 100 Gew.-% beträgt,

und

5

c) 0 bis 50 Gew.-% übliche Zusatzstoffe als Komponente C,

wobei die Summe der Gewichtsprocente der Komponenten A und B und gegebenenfalls C 100 Gew.-% beträgt.

10

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 98/02380

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C08L101/00 C08L67/02 C08K3/08 C09C1/64 C08J11/06  
B29B17/00 B09B3/00 //(C08L101/00,69:00),(C08L67/02,69:00,  
51:04)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C08K C08L C09C C08J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 9706 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A23, AN 97-061982 XP002076569 & JP 08 311 326 A (TEIJIN KASEI LTD) , 26 November 1996 see abstract ---	1,3,4,6, 7,9
X	DE 42 44 027 A (BAYER AG) 30 June 1994  see claims 1-5; example 1C see page 8, line 20 - line 35 ---	1-4,6,7, 9
X	DE 43 38 282 A (BUNA GMBH) 11 May 1995 see abstract; example; table 1 ---	9
	--- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 September 1998

Date of mailing of the international search report

21/09/1998

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Krische, D

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter Application No

PCT/EP 98/02380

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	DE 43 11 138 A (BAYER AG) 6 October 1994 see page 2, line 1 - page 3, line 16 ---	1-4,6,7, 9
Y	EP 0 105 388 A (GENERAL ELECTRIC) 18 April 1984 see claims 1,2,16,17; example 10 ---	1-4,6,7, 9
Y	DE 41 23 199 A (WITT, GEORG) 21 January 1993 cited in the application see abstract ---	5
Y	WO 95 05488 A (SORG, EDMUND) 23 February 1995 see claims 1,5 see page 5, line 23 - page 6, line 27 ---	5
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 9632 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A23, AN 96-317602 XP002076570 & JP 08 142 054 A (TEIJIN KASEI LTD) , 4 June 1996 see abstract ---	1,4,6,7, 9
A	US 4 684 686 A (HEPP, LEONARD R.) 4 August 1987 see claims 1,4,7-11 ---	1,2
A	EP 0 107 015 A (MOBAY CHEMICAL CORP) 2 May 1984 see abstract ---	1-3
A	EP 0 061 147 A (RIES, WALTER) 29 September 1982 see claims 1,5,6 see page 3, line 15 - page 4, line 21 -----	1,5

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No  
PCT/EP 98/02380

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4244027 A	30-06-1994	NONE	
DE 4338282 A	11-05-1995	WO 9513322 A	18-05-1995
DE 4311138 A	06-10-1994	NONE	
EP 0105388 A	18-04-1984	JP 59089348 A	23-05-1984
DE 4123199 A	21-01-1993	WO 9406608 A	31-03-1994
		HU 66226 A,B	28-10-1994
		AU 2557192 A	12-04-1994
		EP 0613413 A	07-09-1994
		DE 59208254 D	24-04-1997
		JP 7504860 T	01-06-1995
		US 5619898 A	15-04-1997
WO 9505488 A	23-02-1995	DE 4329773 C	22-12-1994
		AU 7455994 A	14-03-1995
US 4684686 A	04-08-1987	NONE	
EP 0107015 A	02-05-1984	US 4466912 A	21-08-1984
		CA 1206288 A	17-06-1986
		JP 1633781 C	20-01-1992
		JP 2045656 B	11-10-1990
		JP 59081359 A	11-05-1984
EP 0061147 A	29-09-1982	DE 3110254 A	07-10-1982
		DE 3135716 A	01-06-1983
		DE 3150352 A	21-10-1982

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C08L101/00 C08L67/02 C08K3/08 C09C1/64 C08J11/06  
 B29B17/00 B09B3/00 //((C08L101/00,69:00),(C08L67/02,69:00,  
 51:04)

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C08K C08L C09C C08J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 9706 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A23, AN 97-061982 XP002076569 & JP 08 311 326 A (TEIJIN KASEI LTD) , 26.November 1996 siehe Zusammenfassung ---	1,3,4,6, 7,9
X	DE 42 44 027 A (BAYER AG) 30.Juni 1994 siehe Ansprüche 1-5; Beispiel 1C siehe Seite 8, Zeile 20 - Zeile 35 ---	1-4,6,7, 9
X	DE 43 38 282 A (BUNA GMBH) 11.Mai 1995 siehe Zusammenfassung; Beispiel; Tabelle 1 --- -/--	9

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen. :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4.September 1998

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/09/1998

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Krische, D

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	DE 43 11 138 A (BAYER AG) 6.Oktober 1994 siehe Seite 2, Zeile 1 - Seite 3, Zeile 16 ---	1-4,6,7, 9
Y	EP 0 105 388 A (GENERAL ELECTRIC) 18.April 1984 siehe Ansprüche 1,2,16,17; Beispiel 10 ---	1-4,6,7, 9
Y	DE 41 23 199 A (WITT, GEORG) 21.Januar 1993 in der Anmeldung erwähnt siehe Zusammenfassung ---	5
Y	WO 95 05488 A (SORG, EDMUND) 23.Februar 1995 siehe Ansprüche 1,5 siehe Seite 5, Zeile 23 - Seite 6, Zeile 27 ---	5
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 9632 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A23, AN 96-317602 XP002076570 & JP 08 142 054 A (TEIJIN KASEI LTD) , 4.Juni 1996 siehe Zusammenfassung ---	1,4,6,7, 9
A	US 4 684 686 A (HEPP, LEONARD R.) 4.August 1987 siehe Ansprüche 1,4,7-11 ---	1,2
A	EP 0 107 015 A (MOBAY CHEMICAL CORP) 2.Mai 1984 siehe Zusammenfassung ---	1-3
A	EP 0 061 147 A (RIES, WALTER) 29.September 1982 siehe Ansprüche 1,5,6 siehe Seite 3, Zeile 15 - Seite 4, Zeile 21 -----	1,5



# INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung, die zur selben Patentfamilie gehören

Intern Aktenzeichen

PCT/EP 98/02380

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4244027 A	30-06-1994	KEINE	
DE 4338282 A	11-05-1995	WO 9513322 A	18-05-1995
DE 4311138 A	06-10-1994	KEINE	
EP 0105388 A	18-04-1984	JP 59089348 A	23-05-1984
DE 4123199 A	21-01-1993	WO 9406608 A	31-03-1994
		HU 66226 A,B	28-10-1994
		AU 2557192 A	12-04-1994
		EP 0613413 A	07-09-1994
		DE 59208254 D	24-04-1997
		JP 7504860 T	01-06-1995
		US 5619898 A	15-04-1997
WO 9505488 A	23-02-1995	DE 4329773 C	22-12-1994
		AU 7455994 A	14-03-1995
US 4684686 A	04-08-1987	KEINE	
EP 0107015 A	02-05-1984	US 4466912 A	21-08-1984
		CA 1206288 A	17-06-1986
		JP 1633781 C	20-01-1992
		JP 2045656 B	11-10-1990
		JP 59081359 A	11-05-1984
EP 0061147 A	29-09-1982	DE 3110254 A	07-10-1982
		DE 3135716 A	01-06-1983
		DE 3150352 A	21-10-1982

